

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Masato AKITA, et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: DIRECT TYPE FUEL CELL POWER GENERATOR

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS  
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

☐ Full benefit of the filing date of U.S. Application Serial Number , filed , is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.

☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e): Application No. Date Filed

☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

| <u>COUNTRY</u> | <u>APPLICATION NUMBER</u> | <u>MONTH/DAY/YEAR</u> |
|----------------|---------------------------|-----------------------|
| Japan          | 2002-346213               | November 28, 2002     |
| Japan          | 2003-096694               | March 31, 2003        |

Certified copies of the corresponding Convention Application(s)

☒ are submitted herewith

☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

☐ were filed in prior application Serial No. filed

☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number

Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and

☐ (B) Application Serial No.(s)

☐ are submitted herewith

☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.

  
Marvin J. Spivak

Registration No. 24,913

James D. Hamilton

Registration No. 28,421

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000  
Fax. (703) 413-2220  
(OSMMN 05/03)

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 2 年 1 1 月 2 8 日

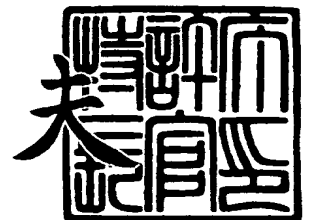
出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 2 - 3 4 6 2 1 3  
[ST. 10/C]: [ J P 2 0 0 2 - 3 4 6 2 1 3 ]

出 願 人  
Applicant(s): 株式会社東芝

2 0 0 3 年 1 1 月 1 2 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願

【整理番号】 PTS0188

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 14/00

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 株式会社東芝  
                                研究開発センター内

    【氏名】 秋田 征人

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 株式会社東芝  
                                研究開発センター内

    【氏名】 山内 尚

【発明者】

    【住所又は居所】 神奈川県川崎市幸区小向東芝町 1 番地 株式会社東芝  
                                研究開発センター内

    【氏名】 高下 雅弘

【特許出願人】

    【識別番号】 000003078

    【氏名又は名称】 株式会社東芝

【代理人】

    【識別番号】 100088487

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 松山 允之

【選任した代理人】

    【識別番号】 100108062

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 日向寺 雅彦

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 087469

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0102774

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 直接型燃料電池発電装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

アノード触媒層を含むアノード極と、カソード触媒層を含むカソード極と、前記アノード極及び前記カソード極の間に配置される電解質膜とを備える起電部単位を少なくとも 2 個具備するとともに、燃料が収容されている燃料容器と、前記起電部単位に燃料を供給するための燃料流路とを備えた直接型燃料電池発電装置において、

前記燃料流路が、燃料容器から第 1 の起電部単位と第 2 の起電部単位を経由して再び第 1 の起電部単位に還流する流路であって、その間に流路の分岐が行われることのない経路を有していることを特徴とする直接型燃料電池発電装置。

【請求項 2】

前記流路は、 $n$  個の起電部単位上を通過する実効的な流路を下記数式 1 に示される誤差範囲内で下記数式 2 に示される  $h$  個の領域数に分割され、 $m$  番目 ( $m = 1, 2, 3, \dots, n$ ) の起電部単位に対して、前記分割された実効的な流路の流路入り口から数えて下記の数式 3 に示される  $a_k$  個目の領域が割り当てられていることを特徴とする請求項 1 記載の直接型燃料電池発電装置。

【数 1】

$$0 \leq \sum_{i=1}^h \left| l_i - \frac{l}{n} \right| \leq \frac{1}{10} l$$

【数 2】

$$h = n \cdot k$$

【数 3】

$$a_k = m + n(k-1) - (2m - n - 1) \frac{1 - (-1)^{k-1}}{2}$$

前記数式における  $l$  は前記実効的な流路の全長で、 $h$  は前記実効的な流路の分割された領域数で、 $n$  は前記実効的な流路が燃料の供給を行っている起電部単位の個数で、 $k$  は任意の自然数を示す。

#### 【発明の詳細な説明】

##### 【0001】

#### 【発明の属する技術分野】

本発明は、流路を改良した直接型燃料電池発電装置に関し、特に燃料としてメタノール又はメタノール水溶液を使用する燃料電池発電装置である。

##### 【0002】

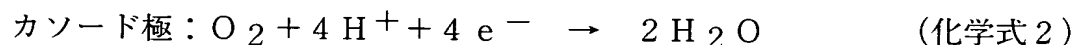
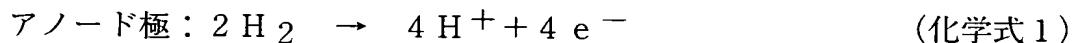
#### 【従来の技術】

燃料電池は、電気化学反応により水素、炭化水素あるいはアルコールなどの燃料の持つ化学エネルギーを電気エネルギーに変換する発電装置であり、燃料を燃焼させることなく直接電気エネルギーに変換するため、高効率で低公害型の発電装置として注目されている。

この燃料電池の内、イオン交換樹脂膜を電解質として用いる固体高分子型燃料電池は、電気自動車用の電源や、住宅用の電源として、近年開発が加速されている燃料電池である。この固体高分子型燃料電池は、アノード極側に水素を含むガス、カソード極側に酸素ガスあるいは空気を導入する。アノード極・カソード極において、それぞれ、下記の化学式1、化学式2に示す反応がおこなわれ、起電力が発生する。

##### 【0003】

#### 【化1】



##### 【0004】

すなわち、アノード極内部の触媒により、水素から電子とプロトンが生成され

る。電子は外部回路により取り出されて発電に用いられる。プロトンはプロトン導電性電解質膜内を拡散により移動してカソード極に到達する。そして、カソード極内部の触媒により、発電に用いられた電子とプロトンと酸素とが反応して水が生成される。このような電池反応によって発電が行われる。

#### 【0005】

一方、近年は直接型メタノール燃料電池が注目を集めている。図10に、直接型メタノール燃料電池における起電部単位の構造を示す。直接メタノール燃料電池の構成は、プロトン導電性電解質の膜107（例えば、パーフルフルオロカーボンスルホン酸系イオン交換膜であり、デュポン社製Nafionなどが好ましく用いられる）をアノード電極103とカソード電極106とで挟持したものとなっている。おのおのの電極は、基板101、105と触媒層102、104とで構成されており、触媒層は、触媒と前記プロトン導電性電解質の樹脂とで構成される。触媒は一般に貴金属触媒あるいはその合金で、カーボンブラックなどの担体に担持して用いられったり、あるいは担持しないで用いられったりする。アノード極の触媒としてはPt-Ru合金、またカソード極の触媒としてはPtが好ましく用いられる。この燃料電池を駆動するには、アノード極側にメタノールと水、カソード極に酸素ガスあるいは空気を導入することにより、アノード極・カソード極それぞれで下記の化学式3及び化学式4に示す反応が生じる。

#### 【0006】

##### 【化2】

アノード極： $\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^-$ （化学式3）

カソード極： $(3/2)\text{O}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^- \rightarrow 3\text{H}_2\text{O}$ （化学式4）

#### 【0007】

すなわち、アノード極触媒層中の触媒により、メタノールと水から電子とプロトンと二酸化炭素が生成され、生成した二酸化炭素は大気中に放出される。電子は外部回路により取り出されて発電に用いられる。また、プロトンはプロトン導

電性電解質膜を移動してカソード極に到達する。カソード極触媒層中では、発電により用いられた電子および酸素と反応して水が生成される。これによって発電が行われる。

#### 【0008】

ところで、この直接型メタノール燃料電池による発電装置においては、起電力は、

通常0.6Vであり、一般に、複数個の起電部を電氣的直列に結線することで単一での起電部の電圧の低さを補っており、それら複数個の起電部に対し均等に燃料を供給するための流路の形状や配管についての様々な手法がこれまでに提案されてきている。それら多くの流路又は配管の構造を大別すると、燃料が収容されている燃料容器から導かれていた配管や流路を起電部の個数だけ分岐させた並列型流路としているものと、一つの流路が複数個の起電部を順に巡る直列型流路の2つに分けることが出来る。

#### 【0009】

しかしながら、前者では流路の分岐や配管に起因した各起電部に対する燃料供給状態のばらつきが生じ易く、そのばらつきを減少させるための更なる工夫を必要とする。又後者においても、逐次複数の起電部で燃料が消費されてしまうために流路前半に位置する起電部と流路後半に位置する起電部での燃料濃度差による出力の差異が必ず生じ、これにおいてもその差異を減少させるための綿密な流路形状の計算が必要となる。

#### 【0010】

これら二つの流路構造における問題点を克服するための流路設計を困難にしているものの一つとして、流路と起電部の隙間からの燃料の漏出も挙げられる。特に水素を燃料とする固体高分子型燃料電池においては、出力の増大を図るために高い加圧状態で燃料及び酸化剤が流路に供給されることが多く、又、仮に加圧状態にされていなくとも、燃料である水素ガスの漏出は安全性の面から完全に防止することが必要となり、複雑な流路形状を設計することは漏出する可能性を高くするという点で可能な限り避けるべきである。

#### 【0011】



【特許文献】 特開平 11-67258 号公報

【0012】

【発明が解決しようとする課題】

一方、直接型メタノール型燃料電池においては、液体燃料であるメタノールのエネルギー密度の高さから携帯電子機器の電源として期待されており、又燃料が液体であるという点からも燃料の加圧の必要が無く、更に水素を燃料とする固体高分子型燃料電池と比較して流路と起電部の隙間からの燃料の漏出の可能性も少ない。従って、固体高分子型燃料電池の燃料供給用流路とは異なり、比較的複雑な流路構造や流路配置が可能と考えられるが、いまだ並列型流路と直列型流路のそれぞれの問題点を解決した直接型メタノール燃料電池発電装置における流路構造の提案がされていない。

本発明は、複数の起電部より構成される直接型メタノール燃料電池発電装置において、起電部単位ごとの出力の偏りが少ない安定した燃料供給を行なえるようにしたものを提供するものである。

【0013】

【課題を解決するための手段】

本発明の直接型燃料電池発電装置は、  
アノード触媒層を含むアノード極と、カソード触媒層を含むカソード極と、前記アノード極及び前記カソード極の間に配置される電解質膜とを備える起電部単位と、メタノール水溶液のような液体燃料が収容されている燃料容器と、前記起電部単位に液体燃料を供給するための流路とを備えた直接型燃料電池発電装置において、

前記起電部単位を少なくとも 2 個以上有し、それらの起電部流路に対し液体燃料が供給されるものであって、

前記流路が第 1 の起電部単位に対し燃料供給を行った後に第 2 の起電部単位での燃料の供給を行い、途中その流路の分岐が行われることなく、再び第 1 の起電部単位への燃料供給を行う流路を備えていることを特徴とする。

【0014】

上記本発明において、第 1 の起電部単位と第 2 の起電部単位に燃料を供給する

流路において、流路の分岐を行うと、当該分岐部分において、流量に差が生じやすく、複数の起電部単位に均等に燃料の供給が行われ難く、安定な発電の障害となるため、分岐部を形成しないことが必要である。

【0015】

また、上述した流路は、 $n$  個の起電部単位上を通過する実効的な流路を下記数式 4 に示される誤差範囲内で下記数式 5 に示される  $h$  個の領域数に分割され、 $m$  番目 ( $m = 1, 2, 3, \dots, n$ ) の起電部単位に対して、前記分割された実効的な流路の流路入り口から数えて下記の数式 6 に示される  $a_k$  個目の領域が割り当てられていることを特徴とする。

【0016】

【数 4】

$$0 \leq \sum_{i=1}^h \left| l_i - \frac{l}{n} \right| \leq \frac{1}{10} l$$

【数 5】

$$h = n \cdot k$$

【数 6】

$$a_k = m + n(k-1) - (2m-n-1) \frac{1-(-1)^{k-1}}{2}$$

前記数式における  $l$  は前記実効的な流路の全長で、 $h$  は前記実効的な流路の分割された領域数で、 $n$  は前記実効的な流路が燃料の供給を行っている起電部単位の個数で、 $k$  は任意の自然数を示す。

【0017】

上記第 2 の本発明において、実効的な流路とは、起電部単位を構成する発電要素に燃料を供給することができるよう、流路が起電部単位と接触している流路を意味するものである。

【0018】

以下に本発明の原理および作用機構について説明する。

本実施形態において、起電部単位への燃料の吸収量は起電部単位での電流密度と同等であることから、重量保存則の元に下記数式 7 が記述できる。

【0019】

【数 7】

$$\frac{d}{dz}(\rho \cdot u) = -\frac{(32+18)JS}{6FS_0l_0}$$

但し、数 7 における  $Z$  は流路の流路入り口からの距離 (cm)、 $S$  は起電部単位の面積 (cm<sup>2</sup>)、 $l_0$  は実効的な流路の全長 (cm)、 $S_0$  は流路の断面積 (cm<sup>2</sup>)、 $J$  は電流密度 (A/cm<sup>2</sup>)、 $\rho$  は位置  $Z$  における燃料密度 (g/cm<sup>3</sup>)、 $\rho_0$  は初期の燃料密度 (g/cm<sup>3</sup>)、 $u$  は流路内における燃料の流速 (cm/sec)、 $T$  は燃料の吸収量 (g/cm<sup>2</sup>/sec) で、 $F$  はファラデー定数であり 96487 C/mol とし、メタノールの分子量を 32、水の分子量を 18、1 反応当たりから得られる電子数を 6 とした。前記数式 7 から、下記数式 8 が得られる。

【数 8】

$$\rho = \rho_0 - \frac{25JS}{3FS_0l_0} \cdot \frac{Z}{u}$$

数式 8 における燃料密度は、下記数式 9 によりメタノール水溶液燃料のモル濃度  $C$  (mol/l) と結び付けられ、最終的に数式 10 が導出される。但し、希釈されていないメタノールの密度を 0.8 g/cm<sup>3</sup> とした。

【数 9】

$$\rho = 1 - \frac{C}{125}$$

【数 10】

$$C = C_0 - \frac{3125JS}{3FS_0I_0} \cdot \frac{Z}{u}$$

【0020】

図1は直接型メタノール燃料電池の起電部単位における電流電圧特性のメタノール水溶液の初期濃度に対する依存性を示した特性図である。測定時の条件は、温度70℃、メタノール水溶液燃料の流速は0.07cm/min、供給空気の流速は11cm/minであり、流路の長さまたは燃料濃度の変化が無視できる面積の起電部単位を用いた。この図1に示した電流電圧特性の燃料濃度依存性から、燃料濃度の差異が10%以内の範囲である場合、限界負荷電流密度の50±10%の負荷電流値における電圧値の誤差は無視できることが理解できるが、前記数式7における関係式により、流路の全長の変化は燃料濃度の変化分 $\Delta C = C_0 - C$ と同値であることが理解でき、即ち、一定の燃料濃度起電部単位における流路長が10%以内の差異である場合も、限界負荷電流密度の50±10%の負荷電流値における電圧値の誤差は無視できることが示され、前記数式1における0.1という値の妥当性が得られる。

【0021】

燃料電池発電装置においては、燃料の供給を行うポンプ等の補器に消費される出力を削減するためにも、燃料の供給流量あたりの燃料利用効率を上げる必要があり、一方、起電部単位の電流電圧特性から判断し長時間安定した出力を得るためには、最大電流密度の60%以下での負荷電流において運転を行うことが望まれる。しかしながら、前記数式4における燃料濃度の減少は流路中の流路入り口からの距離に比例し、燃料供給入り口から出口に至るまでの燃料利用効率が高くなればなるほど、直列型流路にした際の流路後半に位置する起電部単位における出力が著しく低下するのは明らかである。

従って、一つの起電部に対し、濃度の高いままの燃料と濃度の低下した燃料の両方を同量供給し、一つの起電部単位に供給される燃料の平均の濃度の起電部単位間での差を小さくすることで、流路終端における燃料濃度の低下による深刻な

限界電流密度の低下の影響を抑えることが出来る。

本発明は、これらの知見に基づいて完成されたものであり、安定した高い出力の燃料電池発電装置を提供することができる。

#### 【0022】

##### 【発明の実施の形態】

次に本発明の実施形態につき、図面を用いて説明する。

##### [第1の実施の形態]

図2に本発明の第1の実施の形態の直接型燃料電池発電装置の要部を示す。図2に示す構成は起電部単位8を2個備えた燃料電池発電装置の例である。この図2において、(a)が発電装置の起電部単位とその側面に配設された絶縁性流路板および流路蓋体からなる燃料電池発電部要部の側面断面図であり、図2(b)の点線部分で切断した断面図である。図2(b)は、前記絶縁性流路板の流路板発電要素側平面図であり、図2(c)は、前記絶縁性流路板の前記流路蓋体側平面図である。図2(a)、(b)、(c)において、同一の構成部材には同一の符号を付している。

#### 【0023】

図2中、1が絶縁性流路板、2が電流引出用金属製薄膜、3が燃料流路、4が燃料流路入口、5が燃料流路出口、6が流路裏面の蓋、7が樹脂性封止材、9が空気流路である。また、8が起電部単位であり、これは、前記図10に示した構造を採用することができる。この発電部要部の燃料流路入り口4には、図示しないポンプを介して燃料供給手段に接続され燃料が供給されるようになっている。また、空気流路9には、空気などの酸化剤を供給するためのこれも図示しないポンプが接続され、また前記電流引出用金属製薄膜2にはこれも図示しない電極端子が接続され、燃料電池発電装置を構成している。

#### 【0024】

この燃料電池発電装置において、図示しない燃料供給手段から供給されるメタノール水溶液などの燃料は、図2(c)に示されている燃料流路入口4から導入され、その後燃料は起電部単位8aに接する面に流路を屈曲させ、流路3aを通過し、その後起電部単位8aと起電部単位8bとの接合部分において、これに接

触しないように流路を流路蓋体 6 側に屈曲させて流路 3 b を通過し、その後起電部単位 8 b の表面に接触するように屈曲させ、流路 3 c を通過し、その後起電部単位と接触しない領域である流路 3 d を経由した後、起電部単位 8 a と接触する流路 3 e を経由して燃料流路出口 5 から系外に排出される。このように燃料が流路 3 a および 3 e を通過する間は、起電部単位 8 a のアノード極基板に燃料を供給し、流路 3 c を通過する間は起電部単位 8 b に燃料を供給することになる。

#### 【0025】

このような本実施の形態においては、第 1 の起電部単位と第 2 の起電部単位に燃料を供給する燃料流路において、流路の分岐を形成することなく、第 1 の起電部単位から第 2 の起電部単位を通過した流路は再度第 1 の起電部単位に燃料を供給するように循環することを特徴とするものである。そして、複数の起電部単位において燃料供給量がほぼ同等となるように流路と起電部単位の発電要素との接触面積を調整することによって、発電出力の安定性を改善することができる。

#### 【0026】

##### [第 2 の実施の形態]

図 4 に本発明の第 2 の実施の形態の直接型燃料電池発電装置の要部を示す。図 4 に示す構成は、起電部単位 8 を 2 個備え、燃料流路 3 を、2 個の発電部単位を交互に流通するように構成した例である。図 4 (a), (b), (c) は、図 2 (a), (b), (c) と同様に、(a) が発電装置の起電部単位とその側面に配設された絶縁性流路板および流路蓋体からなる燃料電池発電部要部の側面断面図であり、(b) は、前記絶縁性流路板の発電要素側平面図であり、(c) は、前記絶縁性流路板の前記流路蓋体側平面図である。また、図 4 において、図 2 と同等の機能を有する部材は、同じ符号を付し説明を省略する。

#### 【0027】

すなわち、図 4 に見られるように、燃料は、燃料流路入口 4 から、系内に導入され、起電部単位 8 a と 8 b に、交互に燃料を供給するように燃料流路を形成し、燃料流路出口 5 から排出される。一方、酸化剤は、上記空気流路 9 を流通し、起電部単位表面で発電が行われる。この実施の形態において、燃料流路 3 は、起電部単位 8 a に燃料を供給した後、起電部単位 8 b に燃料を供給し、更に、起電

部単位 8 a に戻って、燃料を供給する。以下、起電部単位 8 a と 8 b とに交互に燃料を供給しながら燃料流路出口 5 から排出される。このように、燃料流路を構成することによって燃料は、起電部単位 8 a および 8 b にほぼ均等に安定して燃料を供給することができるため、その出力は更に安定することになる。

この実施の形態において、起電部単位 8 a と起電部単位 8 b に接する燃料流路の接触面積は、実質的に等しいことが望ましい。

#### 【0028】

上記 2 つの実施の形態においては、起電部単位が 2 個の例を示したが、3 個以上の起電部単位を有する発電装置においても同様な手法によって発電出力の安定性を改善することができる。

#### 【0029】

##### 【実施例】

次に本発明をより判りやすくするために、実施例、比較例を説明する。

##### (実施例 1)

前述の第 1 の実施の形態で説明した図 2 の燃料電池発電装置を用いて、次の条件で発電装置の運転を行った。すなわち、起電部単位 8 の面積を  $10\text{ cm}^2$ 、メタノール水溶液燃料の初期濃度を  $3\text{ mol/l}$ 、流路板温度  $70^\circ\text{C}$ 、燃料流量を  $0.12\text{ ml/min}$ 、空気流量を  $80\text{ ml/min}$  とした。

このように構成した直接型メタノール燃料電池発電装置の電流電圧特性の結果を図 3 に示す。この図 3 から、流路入り口に近い起電部単位 1 の限界負荷電流密度の 60% の値は約  $57\text{ mA/cm}^2$  であり、流路出口に近い起電部単位 2 での値は  $46\text{ mA/cm}^2$  であることがわかる。従って、両者を電氣的に直列な回路として負荷を得た場合には、実質的に  $46\text{ mA/cm}^2$  の負荷電流が得られ、後述する比較例の直列型流路を採用した場合に比べて、約 10% の出力向上を得ることが出来ることが確認された。

#### 【0030】

##### (実施例 2)

本実施例は請求項 2 に対応する直接型メタノール燃料電池発電装置の構成で、上記実施例 1 と同様、起電部単位が 2 個である場合の例で、具体的には図 4 に示

す構成である。なお、この図4において、図2と同じ符号は同じものを示す。

前述の第2の実施の形態で説明した図4の装置を用いて発電を行った。その運転条件は実施例1と同条件とした。

このように構成した直接型メタノール燃料電池発電装置の電流電圧特性の結果を図5に示す。この図5から、流路入り口に近い起電部単位1の限界負荷電流密度の60%の値は約 $54\text{ mA/cm}^2$ であり、流路出口に近い起電部単位2での値は $52\text{ mA/cm}^2$ であることがわかる。従って、両者を電氣的に直列な回路として負荷を得た場合には、実質的に $52\text{ mA/cm}^2$ の負荷電流を得られ、後述する比較例の直列型流路を採用した場合に比べて、約24%の出力向上を得ることが出来ることが確認された。

#### 【0031】

##### (比較例1)

起電部単位を2個備え、従来の直流型流路を採用して、図6に示すように直接型メタノール燃料電池発電装置を構成した。図6において、(a)，(b)，(c)の各図は、それぞれ(a)が発電装置の起電部単位とその側面に配設された絶縁性流路板および流路蓋体からなる燃料電池発電部要部の側面断面図であり、図2(b)は、前記絶縁性流路板の発電要素側平面図であり、図2(c)は、前記絶縁性流路板の前記流路蓋体側平面図を示す。図6に示した流路は、2つの起電部単位の電氣的絶縁を得るための絶縁性の部材に導電性の金属薄膜を貼り付けたものを使用し、直列型流路の切削を行って作製した。起電部単位の周囲は、起電部単位の触媒層などからの拡散による燃料の漏出を防止するために熱硬化性の樹脂による封止を施してある。酸化剤を供給するための流路は、並列型流路を用いた。この燃料電池の運転条件は、上述した実施例と同様に、起電部単位の面積を $10\text{ cm}^2$ 、メタノール水溶液燃料の初期濃度を $3\text{ mol/l}$ 、流路板温度 $70^\circ\text{C}$ 、燃料流量を $0.12\text{ ml/min}$ 、空気流量を $80\text{ ml/min}$ とした。

比較例1の装置を運転した結果得られる電流電圧特性を図7に示す。

図7に見られるように、流路入り口に近い位置にある起電部単位1の限界負荷電流密度の60%の値が約 $60\text{ mA/cm}^2$ であり、流路出口側の起電部単位2では、約 $42\text{ mA/cm}^2$ である。従って、両者を電氣的に直列な回路として負



荷を得た場合には、高い燃料利用効率を得られていたとしても、実質的に  $42\text{ mA/cm}^2$  の負荷電流しか得ることが出来なかった。

#### 【0032】

(比較例 2)

起電部単位を 2 個備え、従来の並列型流路を採用して、図 8 に示すように直接型メタノール燃料電池発電装置を構成した。なお、この図 8 においても、図 2 と同等の構成部材には同じ符号を付与している。また、図 8 において、(a) は発電装置の起電部単位とその側面に配設された絶縁性流路板および流路蓋体からなる燃料電池発電部要部の側面断面図であり、図 2 (b) は、前記絶縁性流路板の発電要素側平面図であり、図 2 (c) は、前記絶縁性流路板の前記流路蓋体側平面図である。

この燃料電池発電装置を実施例 2 と同様に運転した場合の負荷電流特性を図 9 に示す。図 9 は二つの起電部単位を電氣的に直列な回路として  $75\text{ mA/cm}^2$  の電流負荷をとり経時変化を追ったものである。

また、図 9 には、実施例 2 の燃料電池発電装置を運転した場合の負荷電流特性も合わせて示す。図 9 の両プロットにおける規則的な細かい変動は、温度制御器によるものである。図 9 から、従来の並列型流路を用いた際には二つの起電部単位に対する燃料供給量の偏りによる出力の不安定性が見られているが、本実施例の流路板による出力においては安定した出力が運転時間によらず得られていることがわかる。

#### 【0033】

上述したように本実施例のように流路を工夫した直接型メタノール燃料電池発電装置を用いることで、起電部単位ごとの出力が損なわれることなく、かつ常に安定した出力を得られることが確認された。

#### 【0034】

##### 【発明の効果】

以上詳述したように本発明によれば、複数の起電部単位を持つ燃料電池発電装置における起電部単位ごとの出力の差異が小さく、かつ燃料利用効率の高い運転条件においても従来の直列型流路および並行型流路に比較して、安定した高い出

力を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 直接型メタノール燃料電池の起電部単位における電流電圧特性のメタノール水溶液の初期濃度に対する依存性を示した特性図。

【図 2】 本発明の実施例 1 を説明する為の図で、起電部単位の数 が 2 個である場合の直接型メタノール燃料電池発電装置の模式図。

【図 3】 図 2 の直接型メタノール燃料電池発電装置を使用した際の二つの起電部単位それぞれの電流電圧特性図。

【図 4】 本発明の実施例 2 を説明する為の図で、起電部単位の数 が 2 個である場合の直接型メタノール燃料電池発電装置の模式図。

【図 5】 図 4 の直接型メタノール燃料電池発電装置を使用した際の二つの起電部単位それぞれの電流電圧特性図。

【図 6】 従来の直列型流路を有する直接型メタノール燃料電池発電装置を用いた比較例 1 を説明する為の模式図。

【図 7】 図 6 の直接型メタノール燃料電池発電装置を使用した際の二つの起電部単位それぞれの電流電圧特性図。

【図 8】 従来の並列型流路を有する直接型メタノール燃料電池発電装置を用いた比較例 2 を説明するための模式図。

【図 9】 実施例 2 と比較例 2 の直接型メタノール燃料電池発電装置を使用した場合の電圧－時間依存性を示した図。

【図 10】 従来の燃料電池発電装置の発電要素を示す願略断面図。

【符号の説明】

- 1…絶縁性流路板
- 2…電流引出用金属製薄膜
- 3…燃料流路
- 4…燃料流路入口
- 5…燃料流路出口
- 6…流路裏面の蓋

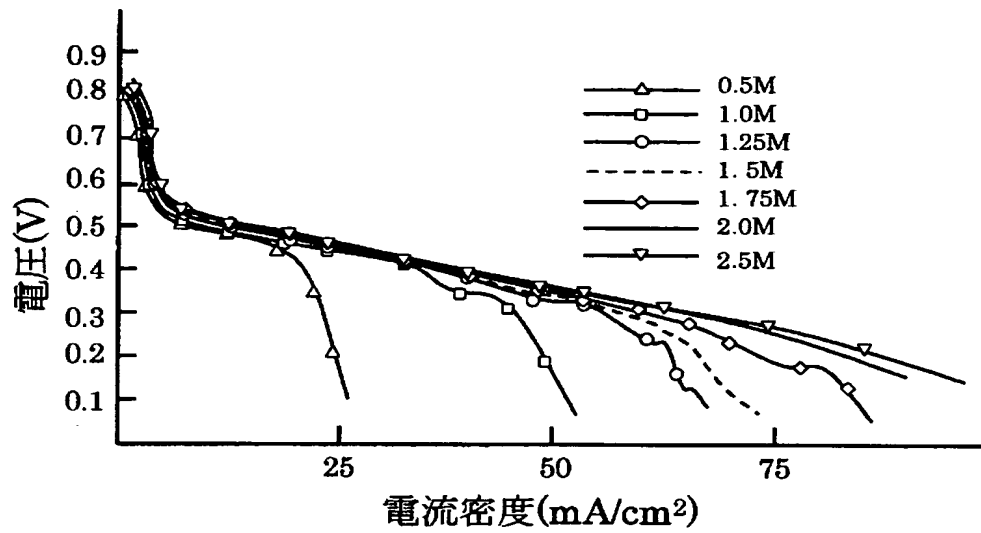
7…樹脂性封止材

8…起電部単位

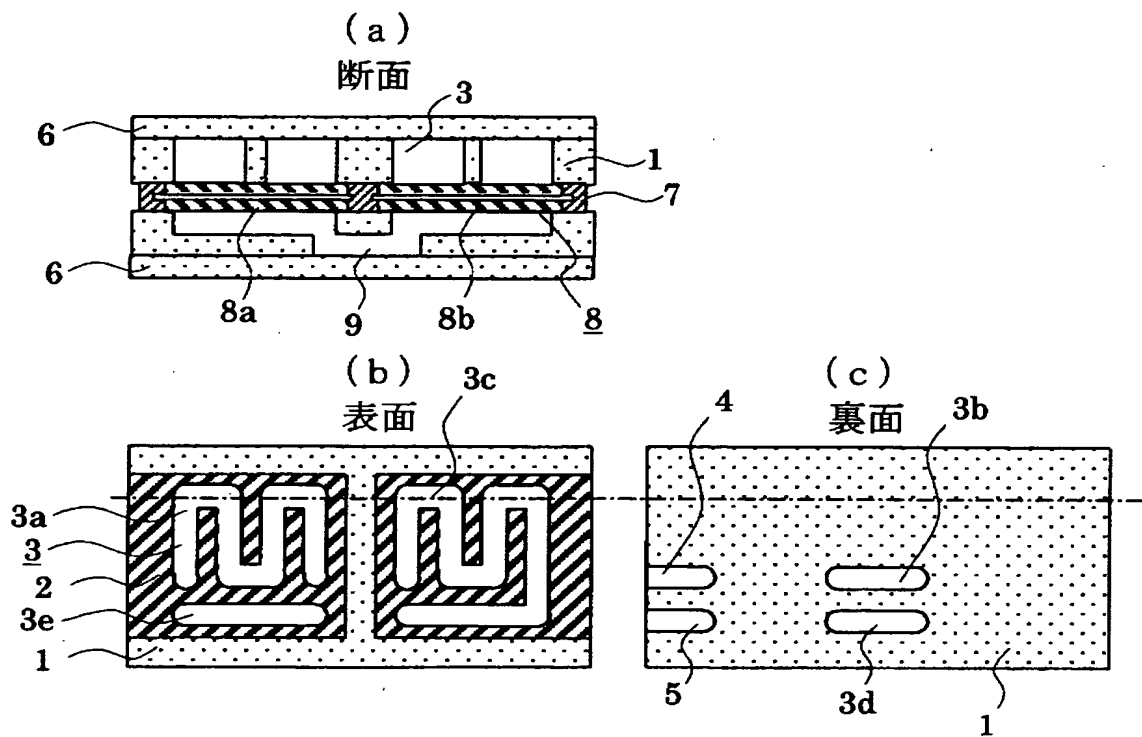
9…空気流路

【書類名】 図面

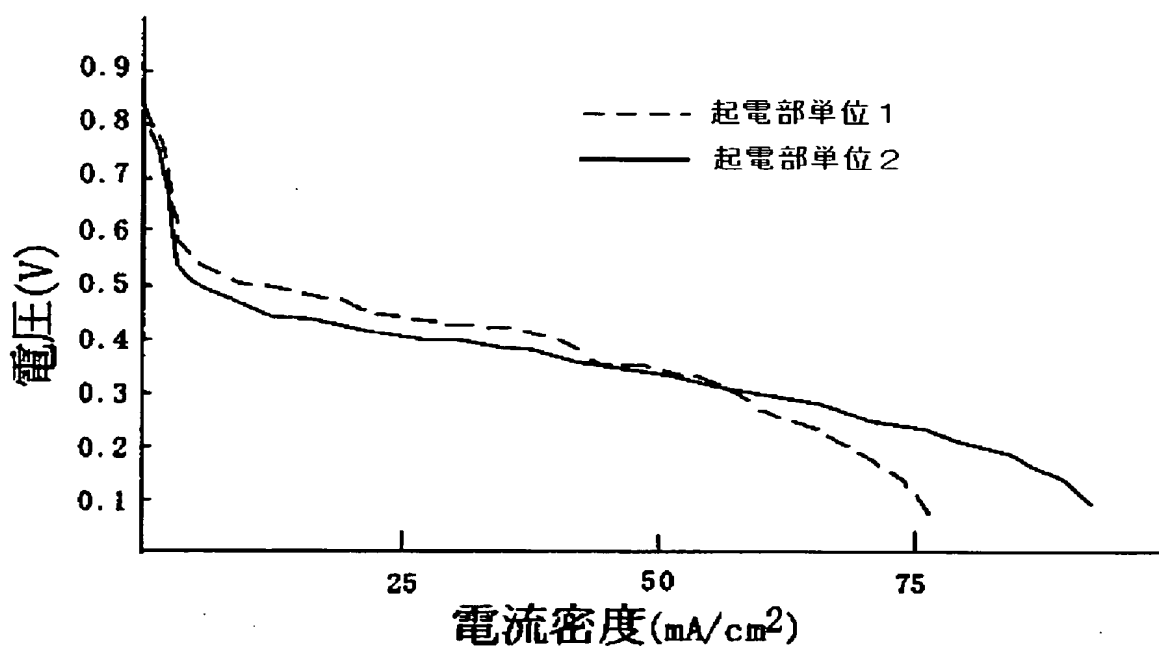
【図 1】



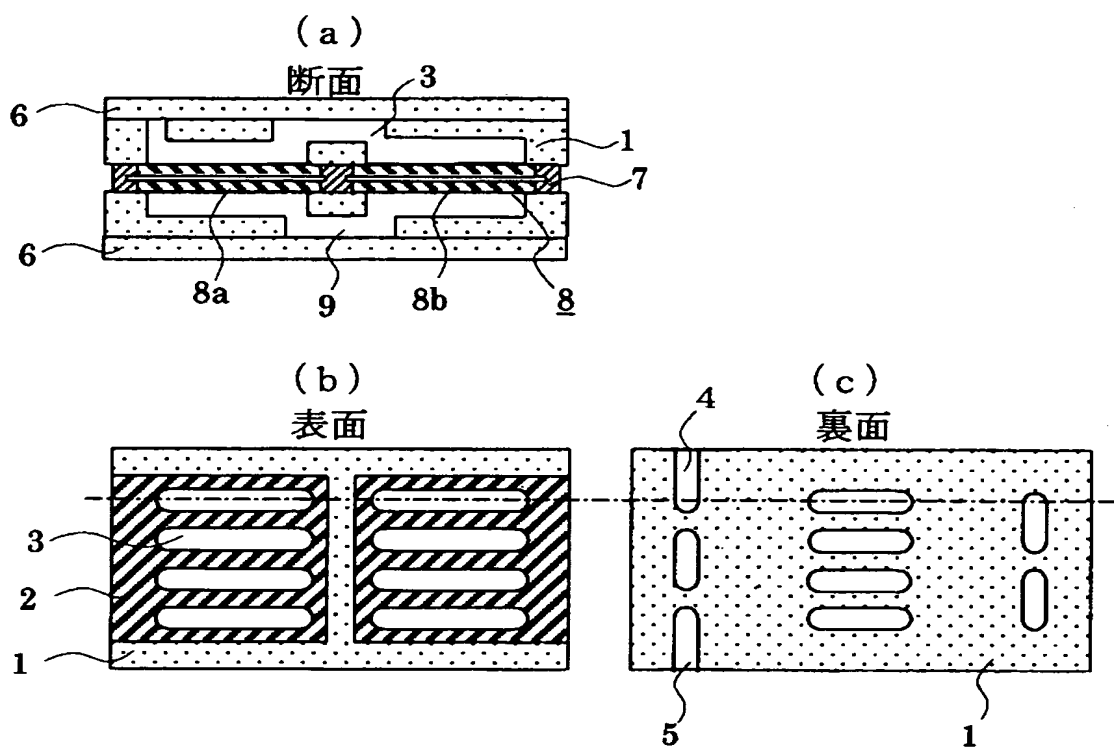
【図 2】



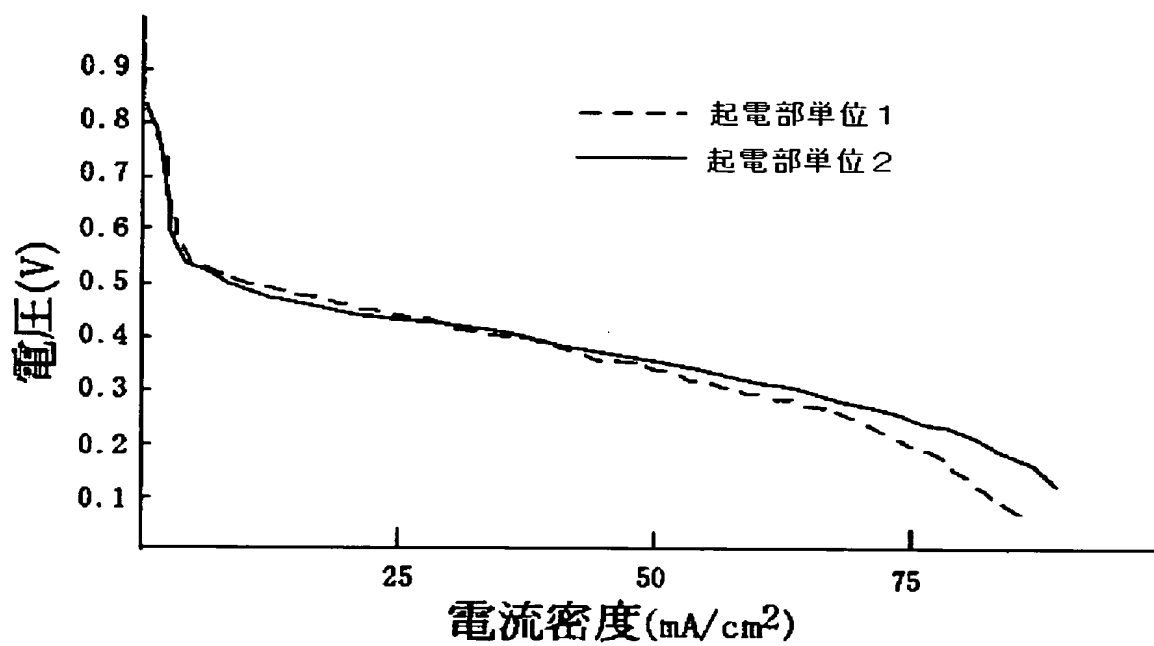
【図3】



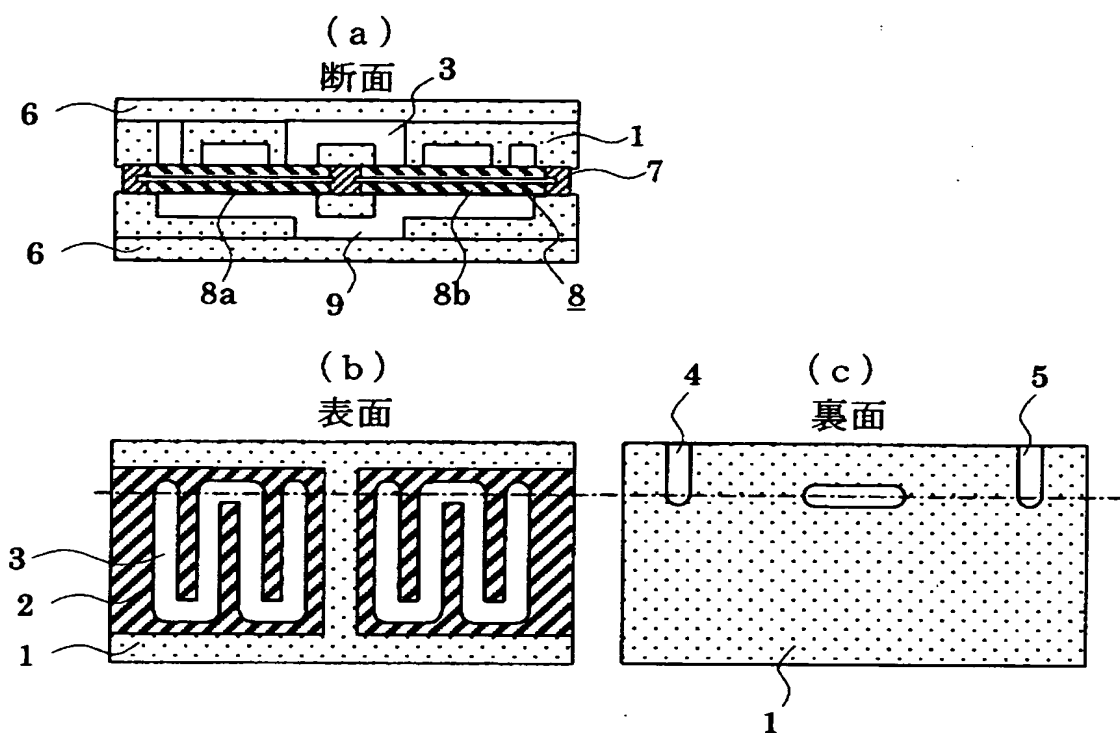
【図4】



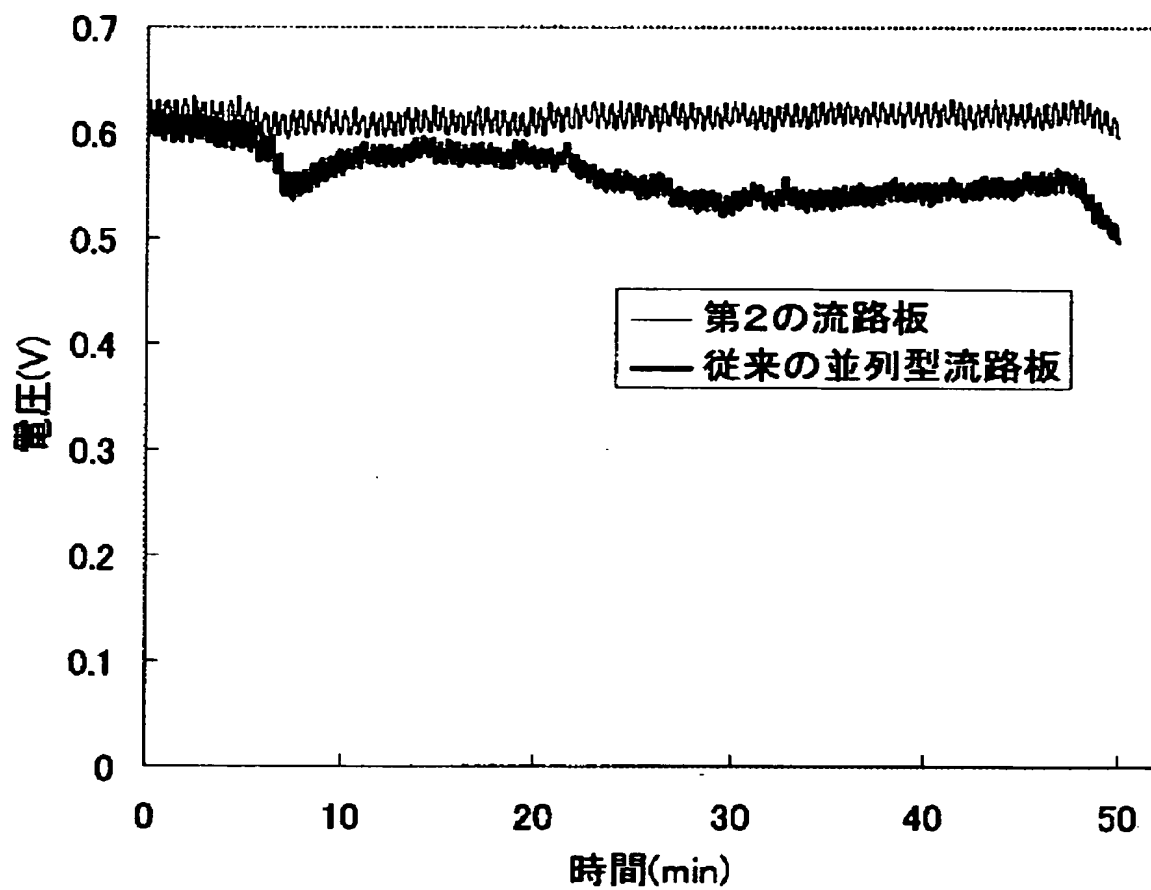
【図 5】



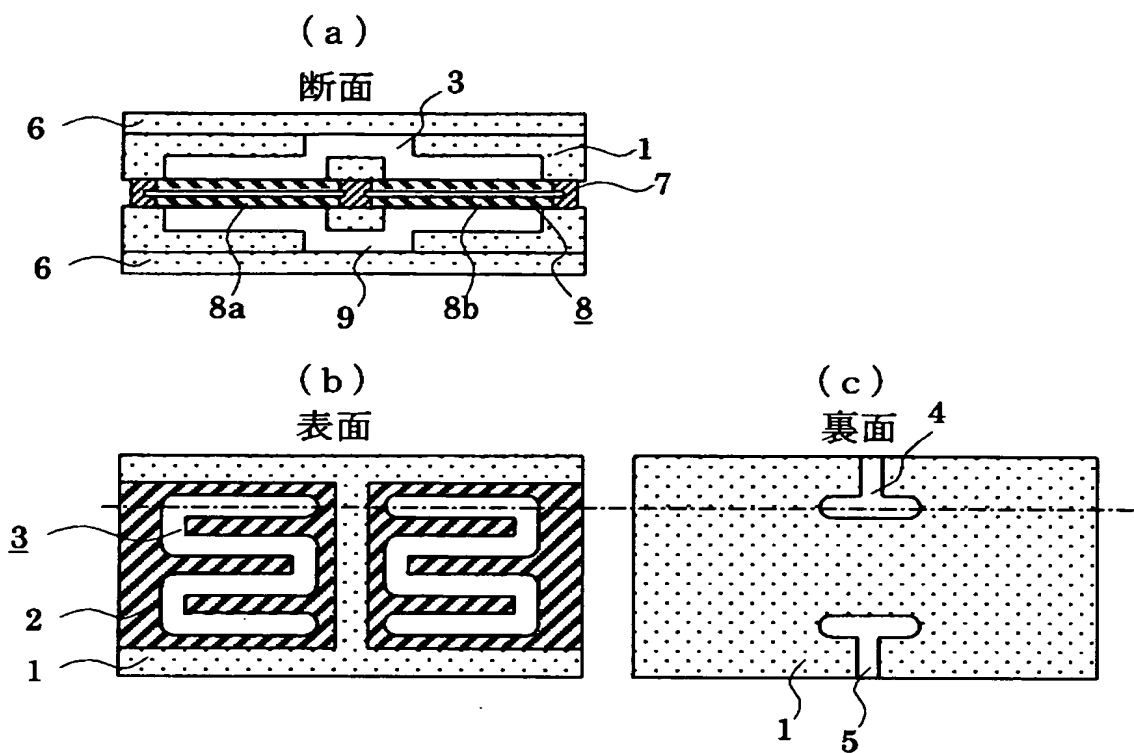
【図 6】



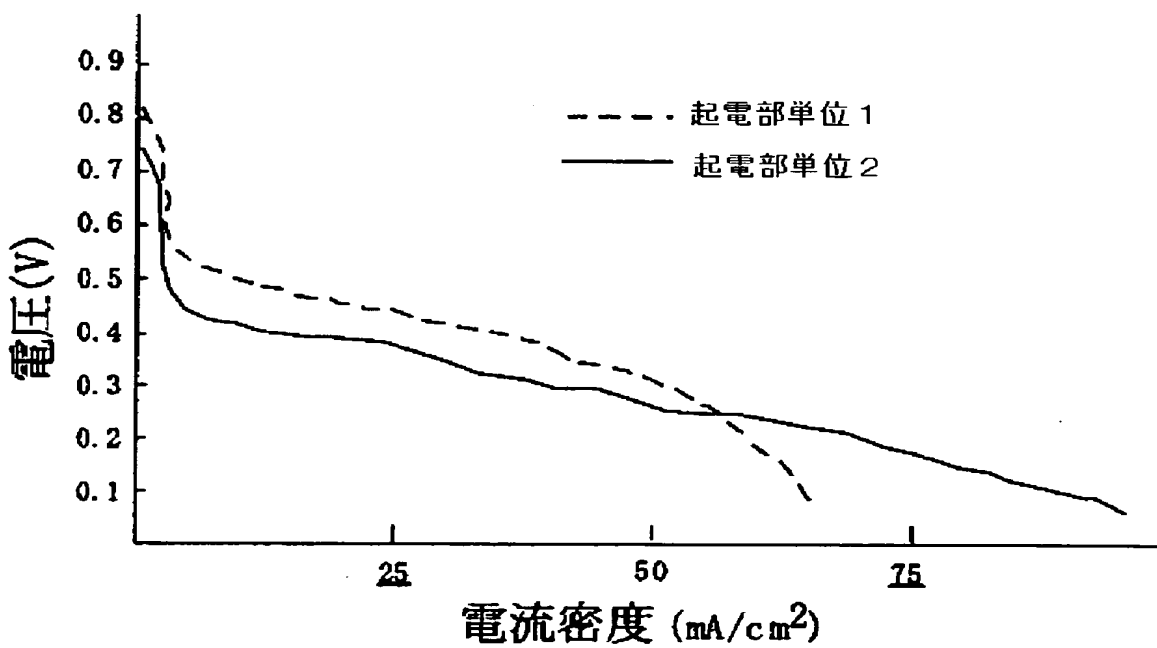
【図 7】



【図 8】

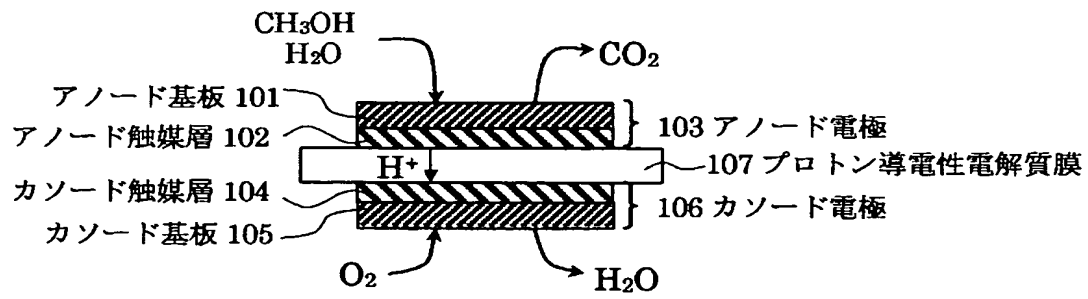


【図 9】





【図 10】



**【書類名】 要約書****【要約】**

**【課題】** 本発明は、複数の起電部より構成される直接型メタノール燃料電池発電装置において、起電部単位ごとの出力の偏りが少ない安定した燃料供給を行なえるようにしたものの提供するものである。

**【解決手段】** 本発明の燃料電池発電装置は、アノード触媒層を含むアノード極と、カソード触媒層を含むカソード極と、前記アノード極及び前記カソード極の間に配置される電解質膜とを備える起電部単位を少なくとも2個具備するとともに、燃料が収容されている燃料容器と、前記起電部単位に燃料を供給するための燃料流路とを備えた直接型燃料電池発電装置において、前記燃料流路3が、燃料容器から第1の起電部単位と第2の起電部単位を経由して再び第1の起電部単位に還流する流路であって、その間に流路の分岐が行われることのない経路を有していることを特徴とするものである。

**【選択図】** 図2

認定・付加情報

|         |                |
|---------|----------------|
| 特許出願の番号 | 特願 2002-346213 |
| 受付番号    | 50201804219    |
| 書類名     | 特許願            |
| 担当官     | 第五担当上席 0094    |
| 作成日     | 平成14年11月29日    |

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成14年11月28日

次頁無

特願 2 0 0 2 - 3 4 6 2 1 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 0 0 0 0 0 3 0 7 8 ]

1. 変更年月日  
[変更理由]

2 0 0 1 年 7 月 2 日

住所変更

住 所

東京都港区芝浦一丁目 1 番 1 号

氏 名

株式会社東芝